

4 福井坂井地区の窒素酸化物の分布および 濃度変動に関する要因の検討（第1報）

山田克則 八幡仁志 岡島一雄 安井 新

I 緒 言

窒素酸化物は、硫黄酸化物と異なり、発生源が固定発生源、移動発生源、群小発生源と多種多様であり、排出条件の変動も大きいという特徴をもっている。

従って、その濃度シミュレーションにおいても、硫黄酸化物とは異なるモデルやファクターの導入が必要であり、既にいくつか的方式が提案されている。

本調査は、シミュレーションを実施した際に、重要視すべきファクターを主として気象条件の面から検索することを究極の目的とするが、今回は、窒素酸化物による汚染の特徴を、硫黄酸化物との対比を中心に、時間的、空間的に検討した。以下にその結果について報告する。

II 調査方法

本年度は実測値からみた窒素酸化物汚染の特徴を把握することに主眼を置き以下の作業を行なった。このうち1,2は風速との関係、3,4は風向、時間帯との関係、5は日平均値の変動における他の測定項目との差異、6は相関係数の比較による他の項目との差異について調べたものである。

1. 弱風継続時間と NO_2/SO_2 比との関係

夜間（18時～翌日5時）の時間帯において風速 2 m/sec 以下の弱風継続時間と NO_2/SO_2 比との関係を月別局別に集計し、結果を帳票とグラフ（X-Yプロッターによる作図）にアウトプットした。

2. NO_2 日平均値と風速日平均値との関係

NO_2 日平均値と風速日平均値間の散布図を季節別局別に作成した。また散布図内の該当点にはその日の NO_2/SO_2 比（1時間値の和の比）を階級をあらわす数字に置きかえて表示した。

3. 風向風速階級別時系列

風向をN系とS系に区分し、同時に風速を6階級に区分してそれぞれの場合の NO_x , NO_2 の時系列変化グラフを月別局別に作成した。

4. 時刻別平均濃度

SO_2 , NO_1 , NO_2 について時刻別平均濃度を季節別および年間、局別に集計し、時系列変化グラフを作成した。

5. 日平均値の年間推移

SO_2 , O_x , HC の日平均値の推移を NO_x , NO_2 の日平均値の推移と比較したグラフを局別に作成した。

6. 項目間、局間相関係数

日平均値、時刻別平均値、風向別平均値、風速別平均値についての項目間相関係数、および日平均値についての局間相関係数を年間データと一部季間データを用いて集計した。

なお各調査項目においてデータは主に1977年度の値を用いた。

III 調査結果と考察

風向、風速などの濃度変動要因と濃度との関係は直線的ではなく、データには多くのばらつきがみられた。しかし観測局によってはそれらの要因がその局の濃度変動の範囲をかなり規定していることが認められた。そこでここでは集計データのうち特徴が比較的明瞭であり代表的であると思われるものについてのみ結果を示した。

1. 弱風継続時間と NO_2/SO_2 比との関係

図1-1, 1-2に坂井地区の金津局と福井地区の福井局の夏と冬についてのグラフを示した。山本ら¹⁾は鹿島地区での観測例から冬期の方から夜半にかけては弱風時間の継続とともに NO_2/SO_2 比に増大がみられるが夏期にはそのような傾向はみられず、これは夏期には接地逆転層が形成されにくいためであると報告している。福井坂井地区の場合、金津局のように平野部に位置する観測局では同じ傾向が認められた。

ただし冬期は風速が大きくなり、弱風継続の例数は少なくなる。福井局のように都市部に位置する観測局でも冬期の NO_2/SO_2 比増大は若干見受けられるが明瞭ではなかった。この理由としてはおそらく福井地区の多数の SO_x 煙源から排出される SO_2 もある程度弱風継続時間とともに蓄積されるためであろうと思われる。

また弱風継続時間がある程度長くなると NO_2/SO_2 比はむしろ減少する傾向が各局でみられた。これは夜間の交通量減少に伴う NO_x 排出量の低下および拡散の効果が蓄積を上回るためと考えられる。

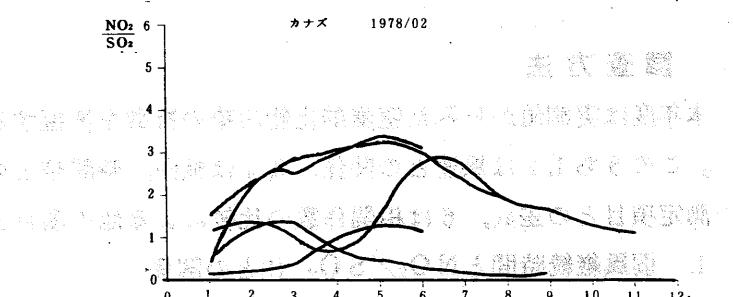
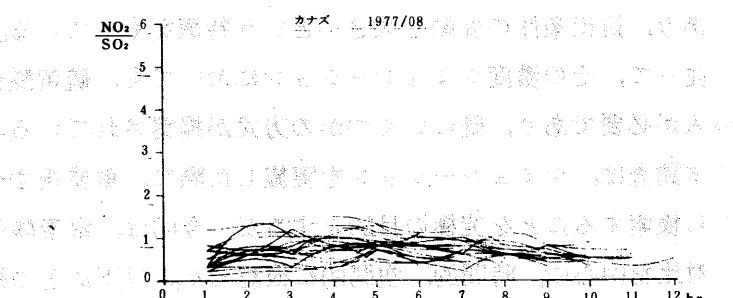


図1-1 弱風継続時間と NO_2/SO_2 比との関係(金津局)

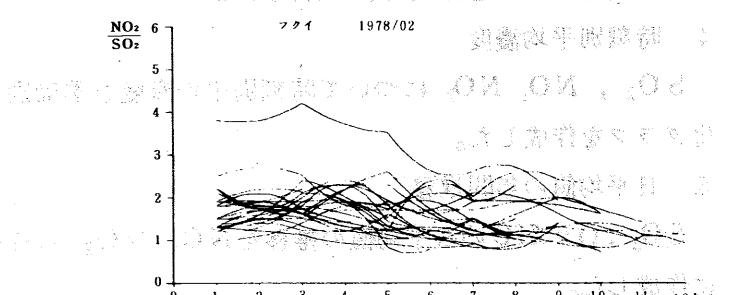
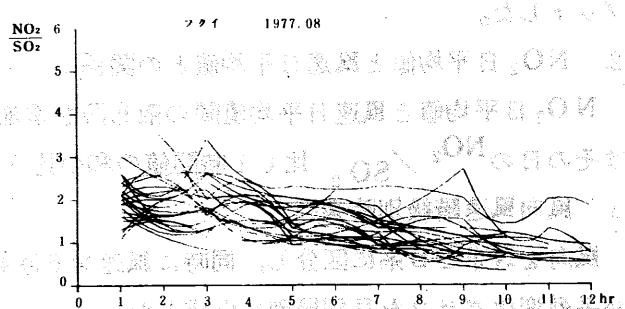


図1-2 弱風継続時間と NO_2/SO_2 比との関係(福井局)

2. NO_2 日平均値と風速日平均値との関係

図2-1, 2-2に坂井地区の坂井局と福井地区の福井局について夏期と冬期の NO_2 一風速間の散布図を示した。両局の特徴を次に示す。

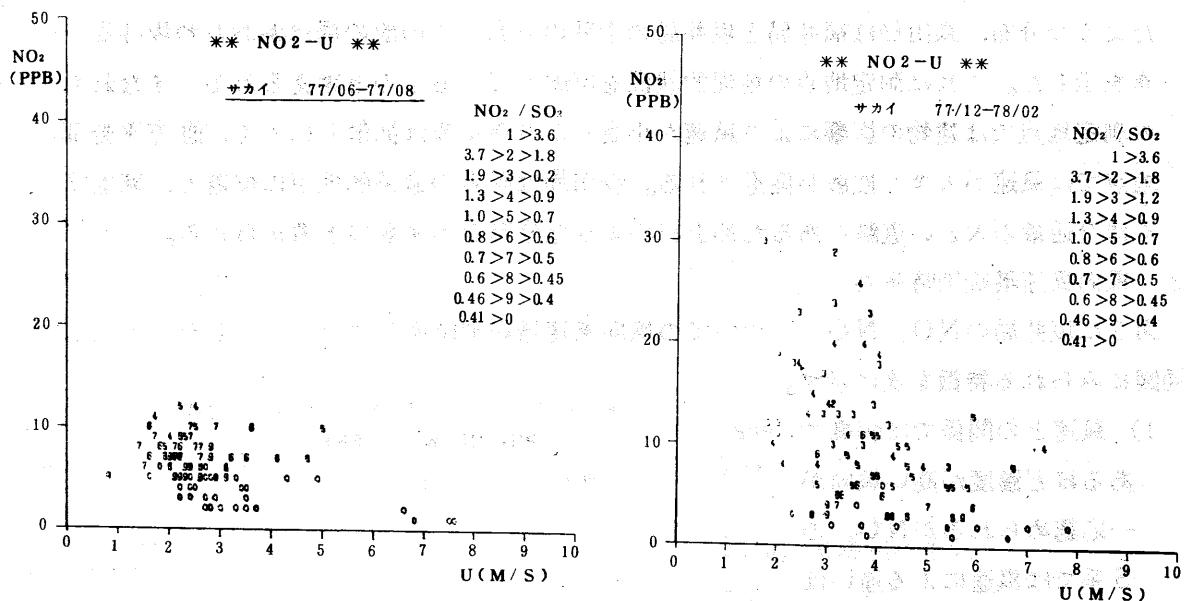


図 2-1 NO₂ 日平均値と風速日平均値との関係(坂井局)

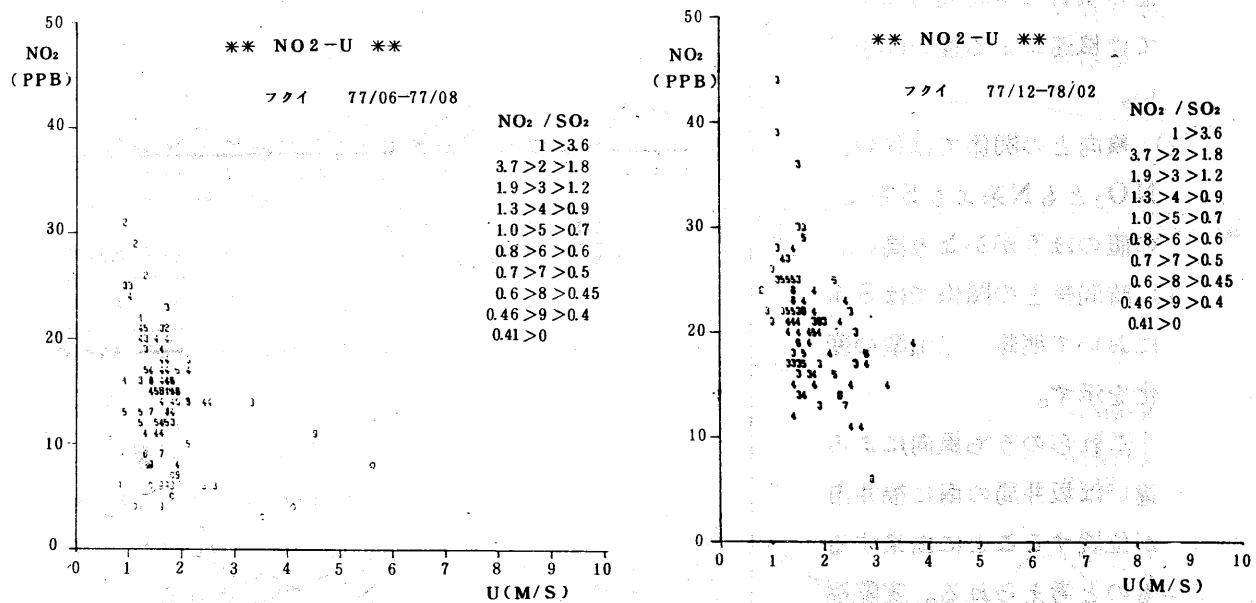


図 2-2 NO₂ 日平均値と風速日平均値との関係(福井局)

- 1) 両局とも夏期よりも冬期のほうが同じ風速でのNO₂濃度が高く、かつ両局とも夏期よりも冬期のほうがNO₂/SO₂比が大きい。
- 2) 坂井局は同じ濃度で風速のばらつきが大きく、福井局は同じ風速で濃度のばらつきが大きい。
- 3) 坂井局と福井局とでは濃度のレベルが異なると同時に風速のレベルが異なる。(福井局は坂井局に比べて濃度が高く風速が小さい。)
- 4) 坂井局では冬期のばらつきが大きい。

以上からNO₂は同じ風速でも冬期は夏期よりも多く蓄積すること、また福井局では風速が小さいことがNO₂濃度が比較的高いことの一因となっていることなどがうかがえる。

福井坂井地区の他の観測局のうち麻生津局は福井局の分布を風速の大きいほうへ少しづらし

たような分布、森田局は福井局と坂井局の中間の分布、その他の局はおおむね坂井局と似た分布を示した。これは測定地点の地理的状況を反映しているものと考えられる。すなわち市街地の測定地点では建物の影響により風速が小さくなり汚染質は拡散しにくく、他方平野部の測定地点では風速が大きく拡散が促進される。森田局は両者の過渡的地点に位置し、麻生津局は近くに交通量の大きい道路があるため上記のような分布を示すものと考えられる。

3. 風向風速階級別時系列

図3に坂井局のNO, NO₂についての風向風速階級別時系列グラフを示した(1977年12月)。同図にみられる特徴を次に示す。

1) 風速との関係では弱風で

あるほど濃度が高い傾向があると認められるがNO₂のS系では風速による違いはそれほど大きくなく、また他の項目でも時間帯によっては風速による違いは小さい。

2) 風向との関係ではNO, NO₂ともN系よりS系での値のほうがかなり高い。

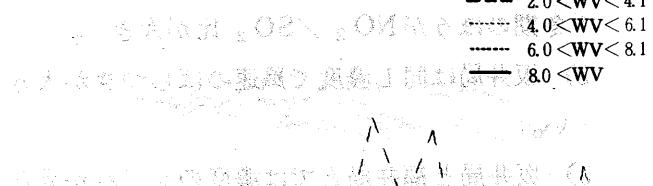
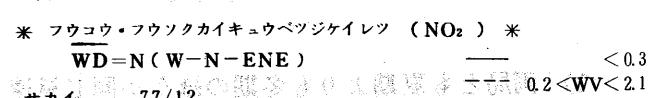
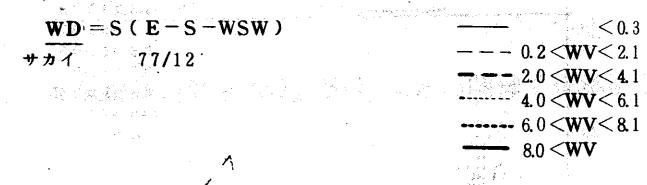
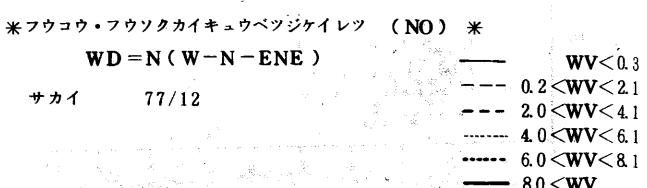
3) 時間帯との関係ではS系において明瞭な二山型の変化を示す。

これらのうち風向による違いは坂井局の南に福井市が位置することに由来するものと考えられる。実際福井市街地の福井局でのN系

S系の差は坂井局の場合ほど

大きくなかった。しかしSO₂に比べると一般にどの局でも風向による濃度変化は大きく、風向の濃度変動要因としての役割は大きいと考えられる。このことはまた風向を規定する気圧配置などの影響もSO₂の場合より

NO, NO₂のほうが大きいことを示唆する。



また坂井局の場合 NO_2 は NO に比べて N 系の場合もかなりの濃度になる。このことは一次汚染質と二次汚染質の違いをあらわすものと考えられる。

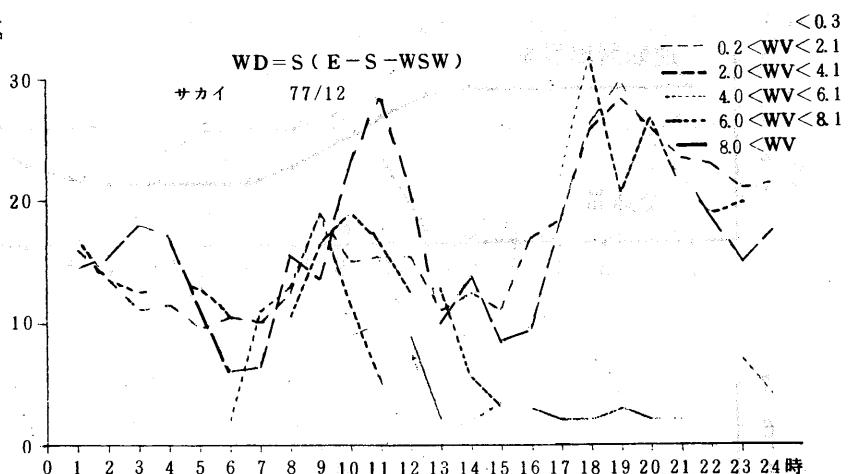


図 3 風向風速階級別時系列

4. 時刻別平均濃度

図 4-1 に福井局における SO_2 , NO , NO_2 についての時刻別平均濃度の推移グラフを示した。

また図 4-2 に特殊気象観測局における逆転層出現率と自排福井局における交通量の時系列変化、及び両者の積と福井局における $\text{NO} + \text{NO}_2$ の時刻別平均濃度の推移を示した（データは年間値、目盛はいずれも相対目盛）これらのグラフから NO , NO_2 は明らかに SO_2 とは異なった変化を示し、移動発生源の寄与が大きいことが知られる。また気象要因を加味した移動発生源の負荷としては、交通量 × 逆転層出現率が $\text{NO} + \text{NO}_2$ と比較的よい相関関係をもつことがうかがえる。

また NO_2 は NO に比べて夕方のピークのほうが朝方のピークより高い傾向がみられる。これは NO_2 の二次汚染質としての蓄積が逆転層の発達し始める夕方に著しいためではないかと考えられる。

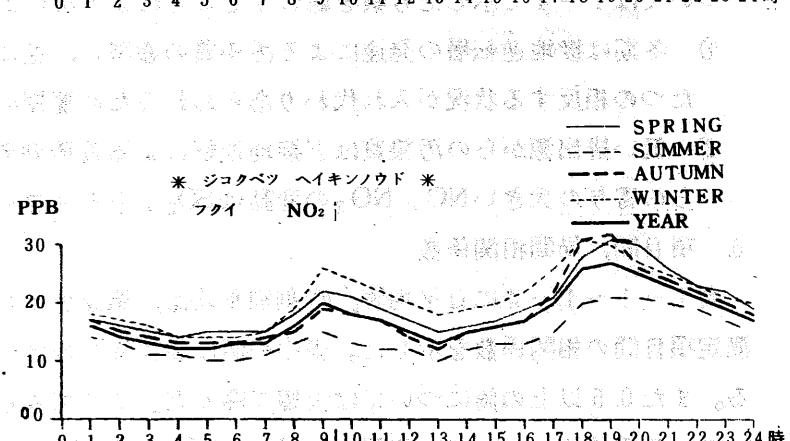
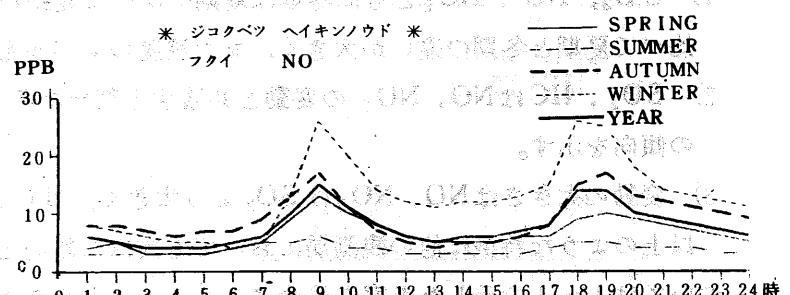
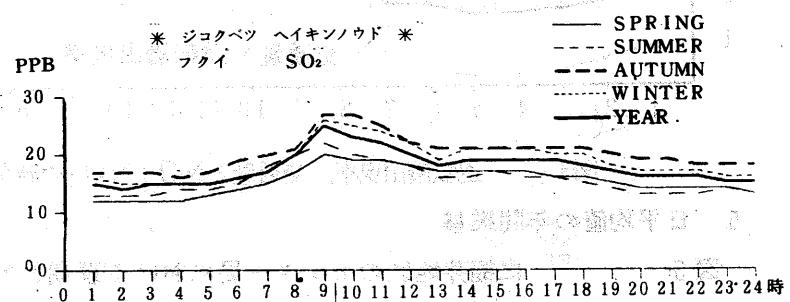


図 4-1 時刻別平均濃度

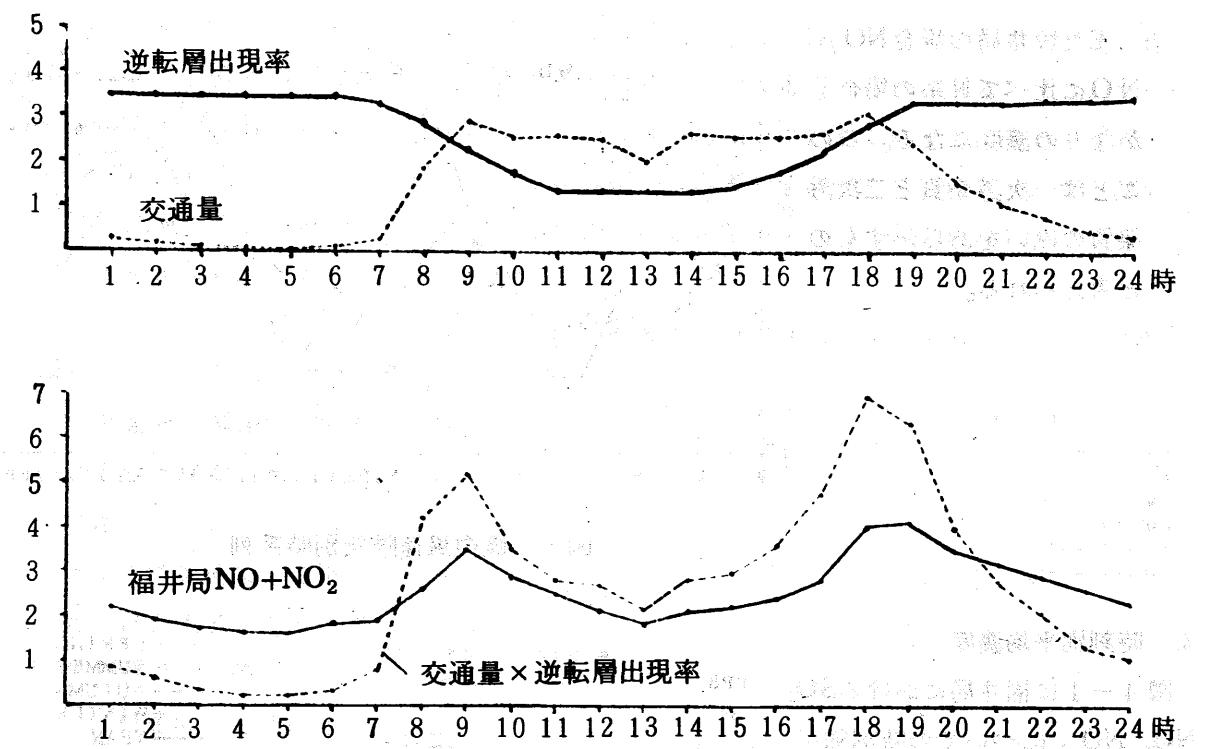


図4-2 逆転層出現率、交通量とNO+NO₂の時刻別平均濃度

5. 日平均値の年間推移

図5 に福井地区のセンター局における夏期と冬期のSO₂, O_x, HCの日平均値の推移をそれぞれNO, NO₂の日平均値の推移をそれぞれNO, NO₂の日平均値の推移と比較したグラフを示した。同図にみられる特徴を次に示す。

- 1) SO₂, NO, NO₂ともに冬期は夏期に比べて変動が激しくなる。NO, NO₂はSO₂に比べて夏期と冬期の違いが大きく、また濃度のレベルも高くなる。
- 2) SO₂, HCはNO, NO₂の変動と共通する部分が多い(特に冬期)。O_xはほとんど逆の傾向を示す。
- 3) 変動の大きさはNO, NO₂はSO₂より大きく、HCと比較的似ている。

以上のような特徴は他の観測局においても同様な傾向として認められた。このような傾向については1~4で示した考察を総合することにより次のように考えることが可能と思われる。

- 1) 冬期は接地逆転層の発達による汚染質の蓄積と、逆に季節風による速やかな拡散というふたつの相反する状況が入れ代わりあらわれるため夏期に比べると濃度変動が激しくなる。
- 2) 低い排出源からの汚染質ほど接地逆転による蓄積効果を強く受け、その結果移動発生源からの寄与の大きいNO, NO₂の変動はSO₂よりも大きくHCと似かよったものになる。

6. 項目間、局間相関係数

表1-1~1-4に日平均値、時刻別平均値、風速別平均値、風向別平均値についての種々の測定項目間の相関係数を示した。表中の値は坂井福井地区の各観測局での値を平均したものである。また0.5以上の値については太線で囲んだ。ここでみられる特徴は次のようであった。

- 1) 日平均値についての相関ではNO, NO₂はHCと相関が高い。風速とはSP(浮遊粉じん)に次いで負の相関が高い。気温とは負の相関、湿度とは正の相関でいずれもSO₂と異なる。

2) 時刻別平均値、風速別平均値、風向別平均値についての相関ではNO、NO₂とHC、SPとの相関が高い。

図6-1～6-5はSO₂、SP、NO、NO₂、NOx(=NO+NO₂)の年間日平均値データについて、また図6-6～6-9はNOxの季間日平均値データについて坂井福井地区の観測局間の相関係数表を作成し、このうち0.7以上の欄を塗りつぶしたものである。これらの表に見られる特徴を次に示す。

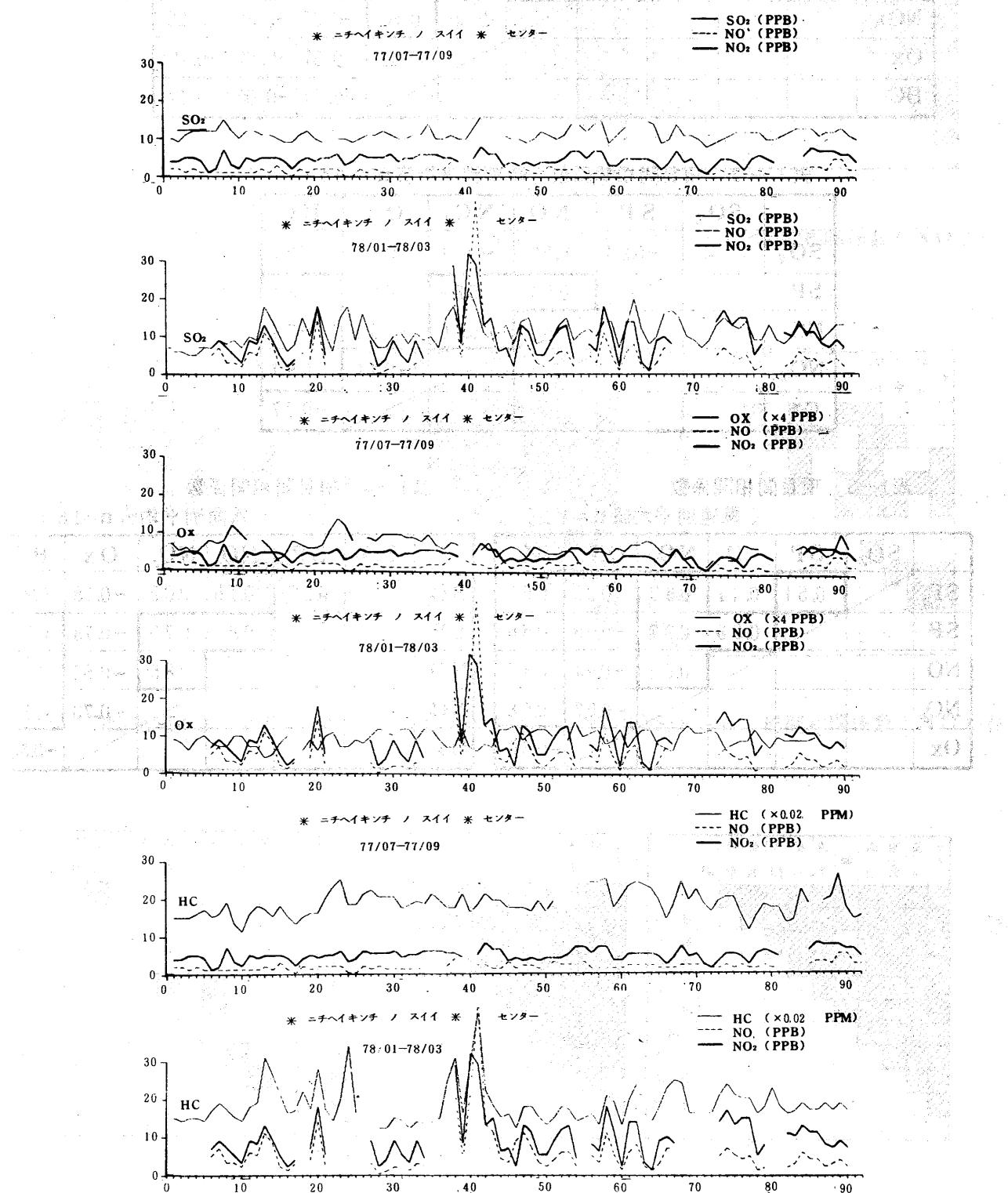


図5 日平均値の推移

表1-1 項目間相関係数(日平均値n=365)

	SO_2	SP	NO	NO_2	NOx	Ox	HC	WV	TEM	HC
SO_2		0.41	0.23	0.35	0.32	-0.05	0.35	-0.25	0.17	-0.16
SP			0.29	0.34	0.34	-0.15	0.37	-0.46	0.45	0.06
NO				0.70	0.92	-0.44	0.58	-0.30	-0.32	0.20
NO_2					0.91	-0.24	0.53	-0.39	-0.37	0.16
NOx						-0.40	0.60	-0.37	-0.36	0.20
Ox							-0.41	0.37	-0.07	-0.39
HC								-0.24	-0.05	0.17

表1-2 項目間相関係数(時刻別平均値n=24)

	SO_2	SP	NO	NO_2	Ox	HC
SO_2		-0.24	0.15	-0.11	0.73	0.01
SP			0.64	0.89	-0.52	0.84
NO				0.70	-0.36	0.79
NO_2					-0.41	0.87
Ox						-0.27

表1-3 項目間相関係数
(風速別平均値n=12)

	SO_2	SP	NO	NO_2	OX	HC
SP		0.51	0.41	0.52	-0.32	0.56
SP			0.93	0.97	-0.98	0.66
NO				0.94	-0.94	0.59
NO_2					-0.97	0.58
Ox						-0.60

表1-4 項目間相関係数
(風向別平均値n=16)

	SO_2	SP	NO	NO_2	Ox	HC	
SO_2			0.27	0.16	0.09	-0.18	0.26
SP				0.82	0.79	-0.78	0.78
NO					0.85	-0.82	0.86
NO_2						-0.73	0.78
Ox							-0.53

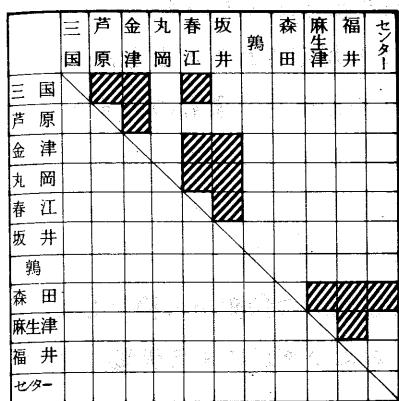


図6-1 局間相関係数(SO_2)

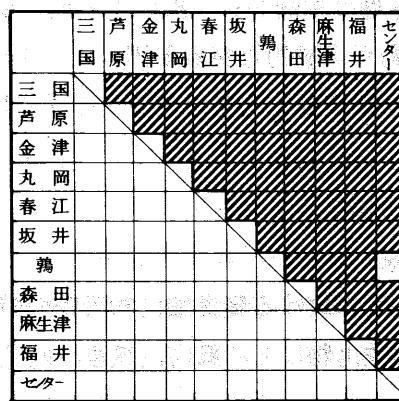


図6-2 局間相関係数(SP)

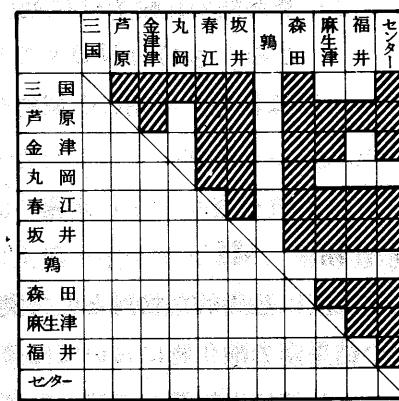


図6-3 局間相関係数(NO)

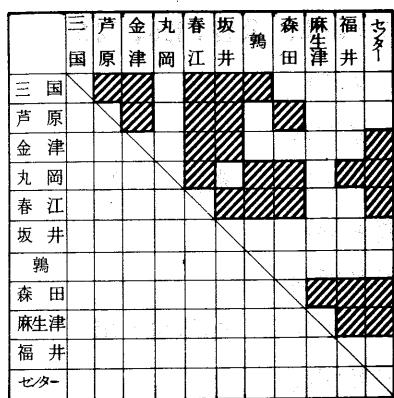


図6-4 局間相関係数(NO_2)

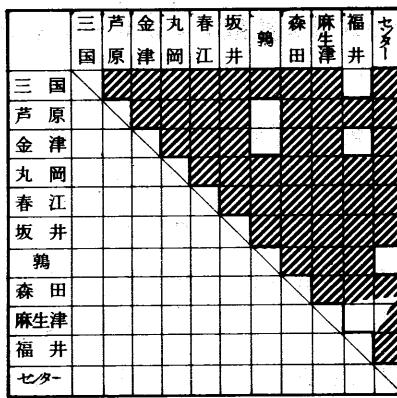


図6-5 局間相関係数(NO_x)

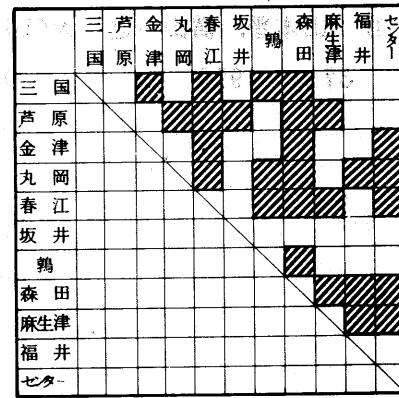


図6-6 局間相関係数(NO_x 春)

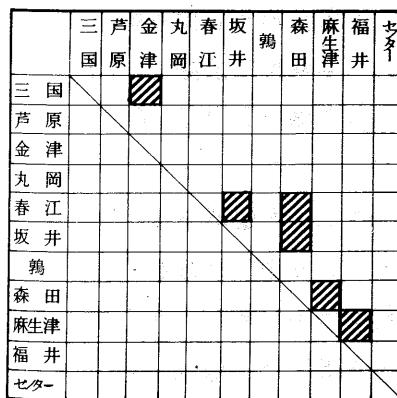


図6-7 局間相関係数(NO_x 夏)

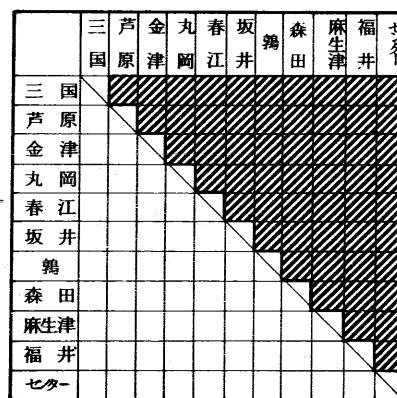


図6-8 局間相関係数(NO_x 秋)

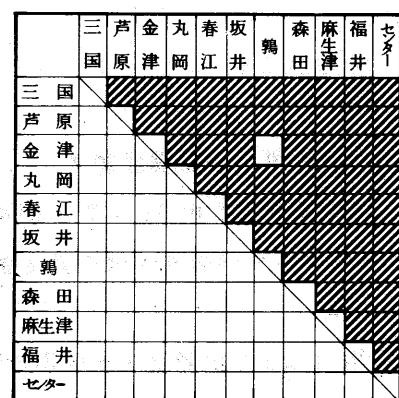


図6-9 局間相関係数(NO_x 冬)

1) 各項目間の比較ではSPが最も局間の相関がよく、次いでNO_x, NO, NO₂, SO₂の順となっている。

2) 季節間の比較では秋期、冬期の相関がよく次いで春期、夏期の順となっている。

このうち1)はNO_xの変動が広域的な気象要因によってかなり規定されることをあらわし2)は秋期、冬期の広域的な気象変動（大気の安定化や季節風）の効果を示すものと考えられる。

IV 結 語

本年度は基礎的な検討として実測値における窒素酸化物汚染の特徴を種々の角度から検討した。その結果窒素酸化物においては硫黄酸化物以上に風向、風速、時間帯および季節による変動が大きく、また接地逆転層の発達の影響を大きくうけていることが示唆された。

来年度は窒素酸化物の変動に及ぼす上記要因の効果を事例的に取り上げてその評価を行なうとともにいくつかの観測局についてその地域特性の検討を実施したいと考えている。

参 考 文 献

- 1) 山本晋、横山長之：大気中でのNO_x拡散シミュレーションについて、公害11(6), 15~37, 1976